

18.01.2005

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 1 月 1 5 日
Date of Application:

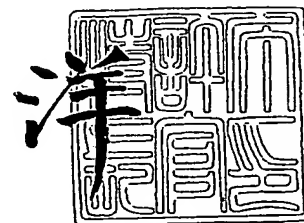
出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 0 0 7 6 0 5
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 4 - 0 0 7 6 0 5]

出 願 人 松 下 電 器 産 業 株 式 会 社
Applicant(s):

2 0 0 4 年 1 2 月 1 3 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 2033750070
【あて先】 特許庁長官 今井 康夫 殿
【国際特許分類】 H01M 8/00
H01M 8/04
H01M 8/06

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内
【氏名】 宮内 伸二

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内
【氏名】 原田 照丸

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内
【氏名】 鶴飼 邦弘

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内
【氏名】 田口 清

【発明者】
【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1006 番地 松下電器産業株式会社内
【氏名】 藤原 誠二

【特許出願人】
【識別番号】 000005821
【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】
【識別番号】 100065868
【弁理士】
【氏名又は名称】 角田 嘉宏
【電話番号】 078-321-8822

【選任した代理人】
【識別番号】 100106242
【弁理士】
【氏名又は名称】 古川 安航
【電話番号】 078-321-8822

【選任した代理人】
【識別番号】 100110951
【弁理士】
【氏名又は名称】 西谷 俊男
【電話番号】 078-321-8822

【選任した代理人】
【識別番号】 100114834
【弁理士】
【氏名又は名称】 幅 慶司
【電話番号】 078-321-8822

【選任した代理人】
【識別番号】 100122264
【弁理士】
【氏名又は名称】 内山 泉
【電話番号】 078-321-8822

【選任した代理人】
【識別番号】 100125645
【弁理士】
【氏名又は名称】 是枝 洋介
【電話番号】 078-321-8822
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 006220
【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【物件名】 委任状 1
【援用の表示】 平成16年1月5日提出の包括委任状

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

原料燃料と水蒸気を用いて改質する改質部、前記改質部から供給されたガスをシフト反応させる変成部、及び前記シフト反応の反応ガス中の一酸化炭素ガス濃度を所定濃度以下に低下させる浄化部を含む水素生成部と、前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方の温度を検知する温度検知手段と、制御手段とを備えた水素生成装置であって、前記制御手段は、前記温度検知手段から出力された検知温度に基づき、前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方の内部の水蒸気量の供給状態を検知する水素生成装置。

【請求項 2】

前記制御手段は、前記検知温度に基づき前記水蒸気量の供給が過剰か否かを判定する請求項 1 記載の水素生成装置。

【請求項 3】

前記変成部は変成触媒体を有しており、前記水素生成部の起動開始時から前記変成触媒体の正常時における反応温度帯の下限値から上限値の間の何れかの値に到達する反応温度到達時間内に、前記温度検知手段から出力された変成部検知温度が前記変成触媒体の反応下限温度値を超えなかった場合には、前記制御手段は、前記変成部の水蒸気量の供給が過剰であると判定する請求項 2 記載の水素生成装置。

【請求項 4】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給が過剰であると判定した場合、前記変成部検知温度が前記変成触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、前記原料燃料および前記水蒸気量の前記改質部への供給を減少させて前記改質部において炭素析出しない量に調整する請求項 3 記載の水素生成装置。

【請求項 5】

前記原料燃料および前記水蒸気の前記改質部への供給を減少する際に前記改質部においてスチーム／カーボン比を 2.0 以上、5.0 以下にする請求項 4 記載の水素生成装置。

【請求項 6】

前記浄化部は CO 選択酸化触媒体を有しており、前記水素生成部の起動開始時から前記 CO 選択酸化触媒体の正常時における反応温度帯の下限値から上限値の間の何れかの値に到達する反応温度到達時間内に、前記温度検知手段から出力された浄化部検知温度が前記 CO 選択酸化触媒体の反応下限温度値を超えなかった場合には、前記制御手段は、前記浄化部の水蒸気量の供給が過剰であると判定する請求項 2 記載の水素生成装置。

【請求項 7】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給が過剰であると判定した場合、前記浄化部検知温度が前記 CO 選択酸化触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、前記原料燃料および前記水蒸気の前記改質部への供給を減少させて前記改質部において炭素析出しない量にする請求項 6 記載の水素生成装置。

【請求項 8】

前記原料燃料および前記水蒸気の前記改質部への供給を減少する際に前記改質部においてスチーム／カーボン比を 2.0 以上、5.0 以下にする請求項 7 記載の水素生成装置。

【請求項 9】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰であると判定した場合、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に接続された排出手段を開栓して水蒸気または凝縮水分に起因する過剰供給水を前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方から排出させる請求項 2 記載の水素生成装置。

【請求項 10】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰であると判定した場合、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に空気を供給するための空気供給手段によって前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に空気を導入する請求項 2 記載の水素生成装置。

【請求項 11】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰であると判定した場合、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に設けられた加温手段によって前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方を加温する請求項 2 記載の水素生成装置。

【請求項 12】

請求項 1 乃至 11 の何れかに記載の水素生成装置から供給される水素リッチガスを用いて発電する燃料電池を備えた燃料電池システム。

【書類名】明細書

【発明の名称】水素生成装置およびこれを備える燃料電池システム

【技術分野】

【0001】

本発明は、水素生成装置およびこれを備える燃料電池システムに関し、特に改質ガス中の一酸化炭素ガスを低減するための変成部および／または浄化部の水蒸気量の供給状態の検知を可能にする制御装置を有する水素生成装置およびこれを備える燃料電池システムに関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池システムは、燃料電池本体の燃料極に燃料ガスとして供給される水素リッチな改質ガスと、その空気極に酸化剤ガスとして供給される空気等を燃料電池本体の内部で反応させることで、電力および熱を発生させる。水素リッチな改質ガスの生成方法のひとつに、水蒸気改質法がある。これは、天然ガス、LPG等の炭化水素系ガス、メタノール等のアルコール、ナフサ成分等のガソリンを使った原料燃料と水蒸気を反応させて、水素リッチな改質ガスを生成する方法である。この改質ガスを生成する水素生成器の内部は、大まかには水蒸気改質反応用の改質部、シフト反応用の変成部およびCO選択酸化用の浄化部に分けられており、各部位にそれぞれ改質触媒体、変成触媒体およびCO選択酸化触媒体が設けられている。

【0003】

ここで、これらの各触媒体の適正な反応温度は互いに相違するため、安定的かつ効率的に水素ガスを供給するには、水素生成器の起動後、各触媒体の適正反応温度に各触媒体の温度を速やかに上昇させて、この温度を一定に維持する必要がある。

【0004】

一方、水素生成器に水蒸気の過剰供給がなされた場合、この過剰供給に起因する水の凝集現象によって反応温度の上昇や安定化を阻害するという問題点が指摘されている。

【0005】

この問題点を解消するため、改質部から変成部にガス通路を介して供給される改質後のガスを水蒸気露点以上の温度にするため、変成部に内蔵された変成触媒体を変成ヒータで加熱するという方法を採用した水素生成器を提案するものがある（例えば特許文献1参照）。これによって、水素生成器の起動時の水素安定供給までに必要な時間短縮を図ると共に、水凝縮によって発生する変成触媒活性の低下を防止している。

【特許文献1】特開平2001-354404号公報（第1図）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

ところが、特開平2001-354404号公報に開示された水素発生器においては、変成部や浄化部の内部において水蒸気の供給過剰状態を的確に判定する手立てがない。よって、水素発生器に導入される水蒸気の過剰供給状況を察知できず、これに起因して発生する燃料電池システムの起動エネルギー損失の低減や変成部および／または浄化部内の触媒活性の低下に適切に対応できない。

【0007】

本発明の目的は、上記課題を解決して、起動エネルギー損失を減らすことができ、しかも変成部および／または浄化部の触媒活性低下を解消できる水素生成装置およびこれを備える燃料電池システムを提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記課題を解決するため、本発明に係る水素生成装置は、原料燃料と水蒸気を用いて改質する改質部、前記改質部から供給されたガスをシフト反応させる変成部、及び前記シフト反応の反応ガス中の一酸化炭素ガス濃度を所定濃度以下に低下させる浄化部を含む水素

生成部と、前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方の温度を検知する温度検知手段と、制御手段とを備えた水素生成装置であって、前記制御手段は、前記温度検知手段から出力された検知温度に基づき、前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方の内部の水蒸気量の供給状態を検知する。そして、前記制御手段は、前記検知温度に基づき前記水蒸気量の供給が過剰か否かを判定することができる。

【0009】

こうすることで、変成部および／または浄化部の水蒸気の供給状態を検知して、仮に過剰供給の場合に速やかに対応して、燃料電池発電装置の起動エネルギー損失を減らし、しかも過剰供給された水分による触媒活性低下という問題にも適切に対応できる。

【0010】

ここで、前記変成部は変成触媒体を有しており、前記水素生成部の起動開始時から前記変成触媒体の正常時における反応温度帯の下限値から上限値の間の何れかの値に到達する反応温度到達時間内に、前記変成温度検知手段から出力された変成部検知温度が前記変成触媒体の反応下限温度値を超えなかった場合には、前記制御手段は、前記変成部の水蒸気量の供給が過剰であると判定する。また、前記浄化部はCO選択酸化触媒体を有しており、前記水素生成部の起動開始時から前記CO選択酸化触媒体の正常時における反応温度帯の下限値から上限値の間の何れかの値に到達する反応温度到達時間内に、前記浄化部温度検知手段から出力された浄化部検知温度が前記CO選択酸化触媒体の反応下限温度値を超えなかった場合には、前記制御手段は、前記浄化部の水蒸気量の供給が過剰であると判定する。触媒温度がその反応下限温度さえ超えれば、触媒は水蒸気量または凝縮水分の多寡に関係なく有効に機能し得るため、触媒反応下限温度を基準にして水蒸気量の供給過剰に基づく触媒機能低下を判定すれば、妥当な判定結果を得ることができる。

【0011】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給が過剰であると判定した場合、前記変成部検知温度が前記変成触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、前記原料燃料および前記水蒸気量の前記改質部への供給を減少させて前記改質部において炭素析出しない量に調整しても良い。また、前記制御手段は、前記水蒸気量の供給が過剰であると判定した場合、前記浄化部検知温度が前記CO選択酸化触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、前記原料燃料および前記水蒸気の前記改質部への供給を減少させて前記改質部において炭素析出しない量に調整しても良い。こうして、水蒸気および原料燃料の供給の抑制し炭素析出しない量にして、水蒸気の供給過剰状況に適切に対応できる。

【0012】

更に、前記原料燃料および前記水蒸気の前記改質部への供給を減少する際に前記改質部においてスチーム／カーボン比を2.0以上、5.0以下にすることで水蒸気の過剰供給に適切に対応できる。スチーム／カーボン比を2.0以上にすることで炭素析出を回避でき、スチーム／カーボン比を5.0以下にすることで装置回復遅延の問題を回避できる。

【0013】

前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰と判定した場合、この状況を解消するため、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に接続された排出手段を介して水蒸気または凝縮水分に起因する過剰供給水を前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方から排出させても良い。また、前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰と判定した場合、この状況を解消するため、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に空気を供給するための空気供給手段によって前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に空気を導入して良い。更に、前記制御手段は、前記水蒸気量の供給過剰と判定した場合、この状況を解消するため、前記水素生成部の作動を停止させ、この停止期間中に前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方に設けられた加温手段によって前記変成部および前記浄化部の少なくとも何れか一方を加温しても良い。こうした排出手段または空気供給手段・加温手段によって前記変成部および／または前

記浄化部から水蒸気または凝縮水分に起因する過剰供給水を適正に除去できる。

【0014】

なお、本発明に係る燃料電池システムは、上記のような水素生成装置から供給される水素リッチガスを用いて発電する燃料電池を備えている。

【発明の効果】

【0015】

本発明によれば、変成部の温度を検知する変成部温度検知手段および／または浄化部の温度を検知する浄化部温度検知手段から出力された検知温度に基づき、変成部および／または浄化部の内部の水蒸気量の供給状態を検知しているため、水蒸気過剰供給という状況の場合に速やかに対処して、燃料電池システムの起動エネルギー損失を抑えると共に、触媒活性の低下を適切に防止できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0016】

以下、本発明の実施の形態を、図面を参照しながら説明する。

【0017】

(実施の形態1)

図1は、実施の形態1の燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【0018】

水素生成装置120は主として、燃料電池本体203に水素リッチなガス（以下、水素リッチガス）を供給する水素生成部118と、メタン、ブタンおよび天然ガス等の炭化水素系の原料燃料の供給量を制御すると共に水素生成部118の変成部および／または浄化部の温度を検知して水蒸気量の異常の有無を検知して判定する制御装置205と、燃料電池本体203に酸化剤ガスとしての空気を供給する酸化剤ガス供給手段200と、水素生成部118に原料燃料を供給する原料供給系107と、水素生成部118に水を供給する第一、第二の水供給系108、109で構成されている。

【0019】

また、燃料電池システム300は、上記の水素生成装置120と、この水素生成装置120から供給される水素リッチガスを用いて発電する燃料電池本体203から構成されている。

ここで、水素生成部118は、水蒸気改質反応を進める改質部100、水蒸気と一酸化炭素ガスを水素ガスと二酸化炭素ガスにシフト反応させる変成部103およびCO選択酸化で一酸化炭素濃度を約10ppm以下に低濃度化させる浄化部105を内蔵している。

【0020】

このため、改質部100には、水蒸気改質反応を促進する改質触媒体101および改質触媒体101への改質熱供給用の改質加熱部102が設けられ、変成部103には、変成触媒体104および変成触媒体104の加熱用変成ヒータ113が設けられ、浄化部105には、CO選択酸化触媒体106およびCO選択酸化触媒体106の加熱用浄化ヒータ114が設けられている。

【0021】

一方、酸化剤ガス供給手段200は、ブローファン等の空気供給装置201と空気を加湿する酸化側加湿器202とで構成されている。

【0022】

[燃料電池システムのハードウェアの構成の詳細について]

図1を用いて燃料電池システム300のハードウェア構成を詳しく説明する。

【0023】

燃料電池本体203においては、燃料極（図示せず）に導入される水素リッチなガス（以下、改質ガスという）と空気極（図示せず）に導入される空気とを反応させることで発電が行われ、電気と熱が発生する。

【0024】

まず、燃料極側に導入される改質ガスの経路とそれに絡むガス反応を説明する。

【0025】

原料供給系107の原料燃料を、第一の燃料ガス通路301に設けた開閉用の電磁弁206および原料供給系107内の原料流量調整弁（図示せず）によって流量調整した後、改質触媒体101に導く。同時に、第一の水供給部108から第一の水通路308を介して水分も改質触媒体101に供給する。これにより、改質部100では、改質触媒体101によって水蒸気改質反応が促進されて、原料燃料と水蒸気から水素ガスリッチな改質ガスが生成される。

【0026】

また、第一の燃料ガス通路301から分岐した第二の燃料ガス通路302にも電磁弁110を設けて、この電磁弁110および原料流量調整弁によって流量制御された原料燃料をこの通路302を介して改質加熱部102のバーナに燃焼用原料として供給する。なお、燃焼ファン111によって燃焼用空気も改質加熱部102のバーナに供給する。

【0027】

その後、第一の改質ガス経路303を介して改質ガスを改質触媒体101から変成触媒体104に導入する一方、第二の水供給部109から第三の水通路310を介して水分を変成触媒体104に供給する。これにより、改質ガスに含有する一酸化炭素ガスと水蒸気を水素ガスと二酸化炭素ガスにシフト反応させることができる。そして、シフト反応後の反応ガス中の一酸化炭素濃度を所定濃度レベル（例えば、10ppm以下）に低下させる目的で、このシフト反応後の改質ガスを第二の改質ガス経路304を介してCO選択酸化触媒体106に導き、CO選択酸化で更なるCO低濃度化を図る。このようにして、水素生成部118中でCO低濃度化された水素ガス主成分の改質ガスが生成される。

【0028】

次に、水素生成部118の浄化部105から供給される水素ガス主成分の改質ガスは、まず第3の改質ガス経路305に流入し、その後、第3の改質ガス経路305の経路中に設けられた切り替え弁204によって第一、第二の分流経路306、307に切り替えてこれらの経路306、307を経て燃料電池本体203または改質加熱部102に供給される。すなわち、第一の分流経路306においては、燃料電池本体203の燃料極に導いた改質ガスの一部を、燃料極の電極反応で必要量消費させた後、残余の改質ガスをオフガスとして改質加熱部102のバーナに還流する。第二の分流経路307においては、改質ガスを、燃料極に導くことなく直接改質加熱部102のバーナに還流する。

【0029】

なお、改質加熱部102のバーナに還流された改質ガスは燃焼ファン111で改質加熱部102に送風された空気と共に改質加熱部102の内部にて燃焼させられる。

【0030】

次に、空気極側に導入される空気の経路を説明する。

【0031】

空気供給装置201の空気は一旦、第一の空気通路311を介して酸化側加湿器202に供給される。また、第一の水通路308から分岐する第二の水通路309を介して第一の水供給部108からの水分を酸化側加湿器202に供給する。こうして、酸化側加湿器202において、空気の加湿を行い、加湿された空気を第二の空気通路312を介して燃料電池本体203の空気極に導く。なお、燃料電池本体203の空気極にて反応に寄与しなかった加湿空気は、そのまま大気に放出される。

【0032】

〔燃料電池システムの制御システムの構成について〕

次に、図1を用いて燃料電池システム300の制御システムの構成を説明する。

【0033】

制御装置205の入力センサとして、各種の温度検知手段がある。より具体的にはこの温度検知手段には、改質部100のガス温度を検知する改質部温度検知手段115、変成部103のガス温度を検知する変成部温度検知手段116および浄化部105のガス温度を検知する浄化部温度検知手段117が含まれている。

【0034】

なおここで、改質部温度検知手段115は改質部100に取り付けられ改質触媒体前の上流側ガス温度を検知でき、変成部温度検知手段116は変成部100に取り付けられ変成部触媒体前の上流側ガス温度を検知でき、浄化部温度検知手段117は、浄化部100に取り付けられCO選択酸化触媒体前の上流側ガス温度を検知できる。

【0035】

筒状触媒体の下部端（ガス下流側）においては過剰水蒸気によって凝縮された水分が溜まり、触媒上部（ガス上流側）よりも触媒にとって厳しい環境下にある。このため、触媒前のガス上流側に検知手段を配置しておき、この位置で水分過剰による異常が検出されれば、当然その下流側方向の触媒部位も水分の過剰状況にあると判定できて便利である。

【0036】

制御装置205の出力動作部として、第一、第二の水供給系108、109の流量調整部、改質触媒体101用の原料燃料量を制御する電磁弁206、加湿加熱部102のバーナに供給する燃焼用原料を制御する電磁弁110、原料供給系107に内蔵され原料燃料の供給元の原料燃料量を調整する原料流量調整弁、変成部103を加熱する変成ヒータ113、浄化部105を加熱する浄化ヒータ114および水素生成部118から供給される改質ガスの流路の切り替えを行う切り替え弁204等がある。

【0037】

各種温度検知手段115、116、117の検知温度は制御装置205に出力され、これらの温度を検知して各種触媒体101、104、106の反応温度を安定させるように制御装置205は、原料供給系107に内蔵された流量調整弁および電磁弁110、206を動作させる共に、水素生成部118の起動時における変成部103および浄化部105の昇温時間短縮のため変成ヒータ113および浄化ヒータ114の出力を制御する。更には、制御装置205は、切り替え弁204を動作させて水素生成部118から供給される生成ガス（改質ガス）を燃料電池本体203または改質加熱部102に導くよう制御する。

【0038】

図2に、水素生成部118の起動開始時（ t_0 ）からの経過時間を横軸として改質部100、変成部103および浄化部105の温度立ち上がり特性を示す。

【0039】

水素生成部118の改質部100に水蒸気改質反応に寄与する水蒸気量を適正に供給でき、かつ変成部103の温度を安定制御するための水蒸気量も適正に供給できた場合、改質部100、変成部103および浄化部105の各部の検知温度の立ち上がり特性は、それぞれ図2に示すKSプロファイル、HSGプロファイルおよびJSGプロファイルで表される。

【0040】

ここで、改質触媒体101、変成触媒体104およびCO選択酸化触媒体106の反応温度帯の中心設定値はそれぞれ、TKs（600～700℃間に存在する所定温度）、THs（200～400℃間に存在する所定温度）およびTJs（100～300℃間に存在する所定温度）であるため、各触媒体101、104、106の反応温度帯の中心設定値にKSプロファイル、HSGプロファイルおよびJSGプロファイルが到達する時刻はそれぞれ、概ね t_1 、 t_2 および t_3 であり、水素生成部118の起動開始時（ t_0 ）からこれらの時刻までに期間は、 $t_1=20\sim30$ 分、 $t_2=30\sim40$ 分および $t_3=40\sim50$ 分と見積もられる。

【0041】

ところが仮に、水素生成部118の改質部100や変成部103に水蒸気を過剰供給した場合もしくは水素生成部118の起動や停止の繰り返しによってこれの加熱と冷却を繰り返した場合、変成部103および／または浄化部105の内部に過剰水蒸気またはこれに起因する過剰な凝集水分が滞ってしまう可能性があり、延いては変成部103および／または浄化部105の内部の水濡れまたは水溜りの要因ともなり得る。このような状況の

場合には、変成部温度検知手段 116 で検知された検知温度の立ち上がり曲線や浄化部温度検知手段 117 で検知された検知温度の立ち上がり曲線は、それら検知温度の昇温速度が遅くなって、正常時の HSG プロファイルや JSG プロファイルと比較してなだらかな昇温カーブを示す。図 2 の HSN プロファイルは、過剰水蒸気等の影響を受けて昇温速度の遅くなった変成部 103 の検知温度特性を示し、J SN プロファイルは、過剰水蒸気等の影響を受けて昇温速度の遅くなった浄化部の検知温度特性を示している。

【0042】

なお、改質部 100 は原料燃料と水蒸気供給の最上流側に配置されているため、過剰水蒸気等の影響を受けにくく、改質部温度検知手段 115 で検知された検知温度の昇温特性は、正常時と過剰水蒸気等供給時の両者間において変化の少ないことを確認している。またここで、図 2 において、変成触媒体 104 および CO 選択酸化触媒体 106 の反応温度帯に対する中心設定値（変成触媒体 104 では TH_s 、CO 選択酸化触媒体 106 では TJ_s ）を中心にして、これらの触媒体 104、106 の反応温度帯の上下限值があり、変成触媒体 104 の反応温度帯の上下限值をそれぞれ TH_{sh} 、 TH_{sl} で図示し、CO 選択酸化触媒体 106 の反応温度帯の上下限值をそれぞれ TJ_{sh} 、 TJ_{sl} で図示している。また、変成触媒体 104 の反応温度帯の中心設定値（ TH_s ）とこれの上下限值（ TH_{sh} 、 TH_{sl} ）の温度差をそれぞれ ΔTH_h 、 ΔTH_l で図示しており、CO 選択酸化触媒体 106 の反応温度の中心設定値（ TJ_s ）とこれの上下限值（ TJ_{sh} 、 TJ_{sl} ）の温度差をそれぞれ ΔTJ_h 、 ΔTJ_l で図示している。

【0043】

過剰水蒸気等の影響下、変成部 103 の HSN プロファイルおよび／または浄化部 105 の J SN プロファイルは、起動開始時（ t_0 ）から正常時（例えば、HSG プロファイルや JSG プロファイル）における触媒反応温度帯の下限値から上限値の間の何れかの値に到達する反応温度到達時間内（図 2 においては反応温度到達時間の例として、中心設定値までの時間 t_2 および t_3 を例示している。）には各触媒の反応下限温度（変成部 103 では TH_{sl} 、浄化部 105 では TJ_{sl} ）さえも超えないという状況になり得る。即ち、正常時の温度上昇レベルと比較して、起動開始時～所定時間の間、仮に検知温度の温度上昇レベルが低ければ、水蒸気過剰の可能性がある。この所定時間の値は、触媒の反応する反応温度帯に基づいて決定されるものであり、具体的には、この所定時間は、正常時の温度プロファイルが反応温度帯の下限値から上限値（一旦、急峻に温度特性が立ち上がり、反応温度帯を超えてオーバーシュートした後、反応温度に到達するような場合を想定）の間の何れかの値に到達する時間とみなし得る。そして、制御手段 205 は、変成部 103 の温度を検知する変成部温度検知手段 116 および／または浄化部 105 の温度を検知する浄化部温度検知手段 117 から出力された検知温度に基づき、変成部 103 および／または浄化部 105 の内部の水蒸気量または凝縮水分量の供給状態を検知して、上記のように起動開始時～所定時間の間、検知温度が触媒反応下限温度に達しなければ、制御手段は供給過剰であると判定する。

【0044】

なおここで、少なくとも触媒反応下限温度を超えれば、各触媒とも水蒸気量または凝縮水分の多寡に関係なく有効に機能し得るため、触媒反応下限温度を過剰水分を許容できるか否かの基準として採用した。

【0045】

〔燃料電池システムの起動開始時から発電までの動作〕

燃料電池システム 300 の水蒸気供給が適切になされた場合（正常時）、改質部および変成部・浄化部の温度検知手段 115、116、117 から出力される検知温度プロファイルのそれぞれは、図 2 の KS プロファイル、HSG プロファイルおよび JSG プロファイルのように改質および変成・浄化の各触媒体 101、104、106 の反応温度帯の中心設定値まで起動開始時から早期に立ち上がる特性を示すことになる。この場合、制御装置 205 は、改質および変成・CO 選択酸化の各触媒体 101、104、106 の温度を所定の安定温度に到達させて、原料供給系 107、電磁弁 110、206、切り替え弁 2

04 および第一、第二の水分供給系108、109等を適切に制御して発電用改質ガスを燃料電池本体203の燃料極を循環させる一方、酸化剤ガス供給手段200から酸化剤ガスを燃料電池本体203の空気極を循環させて発電動作を開始させる。

【0046】

一方、水蒸気量等の供給過剰と制御手段205が判断した場合（異常時）、変成部および浄化部の温度検知手段116、117から出力される検知温度プロファイルのそれぞれは、正常時に比較して図2のHSNプロファイルおよびJSNプロファイルのようになだらかな立ち上がり特性を示すことになる。この場合、変成部103の検知温度が変成触媒体104の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、および／または浄化部105の検知温度がCO選択酸化触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、制御手段205は、原料燃料および水蒸気の供給量を改質部100において炭素析出しない程度（スチーム／カーボン比： $S/C=2.0$ 以上）まで低減させる。なお、水蒸気の供給が多すぎると、装置の回復が遅れるという問題があるため、 S/C の値の上限値は、5.0程度であり、好ましくは、3.0程度である。よって、変成部103の検知温度が変成触媒体104の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、および／または浄化部105の検知温度がCO選択酸化触媒体の反応温度帯の中心設定値を超えるまでは、原料燃料および水蒸気の供給を制御装置205によって S/C の範囲を2.0以上、5.0以下、より望ましくは2.0以上、3.0以下に制御する。

【0047】

原料燃料および水蒸気の具体的制御方法としては、制御手段205から原料供給系107に内蔵された原料流量調整弁および開閉用の電磁弁206に対して流量制御の制御信号を出力し、また、制御手段205から第一、第二の水供給部108、109の流量調整部に吐出量制御の制御信号を出力して炭素析出しない程度まで原料燃料と水蒸気量の改質部100への供給を抑制する。

【0048】

そして、HSNプロファイルおよび／またはJSNプロファイルが変成部103および／または浄化部105の反応温度帯の中心設定値（ T_{Hs} 、 T_{Js} ）を超えた時点（図2中に t_{HN} 、 t_{JN} と図示）で、制御手段205は、原料燃料量を正常時の供給量に戻すための信号を、原料供給系に内蔵された調整弁および電磁弁206に出力し、水蒸気量を正常時の供給量に戻すための信号を第一、第二の供給部108、109に出力する。そして、制御装置205は、改質および変成・CO選択酸化の各触媒体101、104、106の温度を所定の安定温度に到達させて、原料供給系107、電磁弁110、206、切り替え弁204および第一、第二の水分供給系108、109等を適切に制御して発電用改質ガスを燃料電池本体203の内部で循環させる一方、酸化剤ガス供給手段200から酸化剤ガスを燃料電池本体203の空気極を循環させて発電動作を開始させる。

【0049】

こうして、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を検知できるため、この不具合に的確に対処でき、起動エネルギー損失を低減できる。また、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を迅速かつ的確に除去でき、変成部および／または浄化部の触媒活性を的確に復帰させ得る。更には、触媒の活性が低下したまま発電に至ることを回避できて、一酸化炭素によってもたらされる燃料電池本体の触媒被毒も未然に防止できる。

【0050】

（実施の形態2）

図3は、実施の形態2の燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【0051】

水素生成部118、酸化剤ガス供給手段200、燃料電池本体203および制御装置205の基本構成および基本動作は実施の形態1と同様であるため、それらの説明は省略する。

【0052】

本実施の形態2の主要な構成上の変更点は、過剰水蒸気等の影響によって変成部103に溜まった過剰凝集水分を排出する変成部用排出弁400を変成部103に接続させた点と、過剰水蒸気等の影響によって浄化部105に溜まった過剰凝集水分を排出する浄化部用排出弁401を浄化部105に接続させた点にある。なお、これらの排出手段としての排出弁400、401は電磁気弁等であって、制御装置205によって動作制御される。

【0053】

次に、実施の形態2の構成変更に係る動作を説明する。

【0054】

実施の形態1と同様の理由にて、制御手段205が、変成部103の温度を検知する変成部温度検知手段116および／または浄化部105の温度を検知する浄化部温度検知手段117から出力された検知温度に基づき、変成部103および／または浄化部105の内部の水蒸気量または凝縮水分量の供給過剰であると判定した場合、制御手段205はまず、水素生成部118の作動を停止させる。その後、制御手段205は、生成された可燃性ガスのパージを行う。続いて、制御手段205は、水素生成部118の停止期間中に排出経路402、403を介して変成部103と浄化部105に各々接続された排出弁400、401を開栓するようこれらに制御信号を出力して、変成部103および／または浄化部105に溜まった過剰供給水を排出させる。なお、排出弁400、401の開栓は、過剰水分の排除を十分に行い得る時間、例えば数時間から一夜相当の時間を要する。なおこの際、不活性ガス設備（図示せず）から窒素ガス等の不活性ガスを変成部103および／または浄化部105に供給すると、変成部103および／または浄化部105の内圧が増して過剰供給水排出の容易化が図れると共に、それらの内部の乾燥も促進できる。よって、変成部103および／または浄化部105の内部の過剰供給水に起因する水濡れまたは水溜り状況を早期に解消できる。

【0055】

こうして、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を検知できるため、この不具合に的確に対処でき、起動エネルギーの損失を低減できる。また、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を迅速かつ的確に除去でき、変成部および／または浄化部の触媒活性を的確に復帰させ得る。更には、触媒の活性が低下したまま発電に至ることを回避できて、一酸化炭素によってもたらされる燃料電池本体の触媒被毒も未然に防止できる。

【0056】

なお過剰供給水を排出する際に、変成部103や浄化部105の加熱や変成部103や浄化部105への空気の供給を併用すれば、より効果的に過剰供給水を排除できる。

【0057】

(実施の形態3)

図4は、実施の形態3の燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【0058】

水素生成部118、酸化剤ガス供給手段200、燃料電池本体203および制御装置205の基本構成および基本動作は実施の形態1と同様である、それらの説明は省略する。

【0059】

本実施の形態3の主要な構成上の変更点は、過剰水蒸気等の影響によって変成部103に溜まった過剰凝集水分を乾燥させて排除する変成部用空気供給ポンプ500を変成部103に接続させた点と、過剰水蒸気等の影響によって浄化部105に溜まった過剰凝集水分を乾燥させて排除する浄化部用空気供給ポンプ501を浄化部105に接続させた点にある。なお、これらの空気供給手段としての空気供給ポンプ500、501は制御手段205によって動作制御されている。

【0060】

次に、実施の形態3の構成変更に係る動作を説明する。

【0061】

実施の形態1と同様の理由にて、制御手段205が、変成部103の温度を検知する変

成部温度検知手段 116 および／または浄化部 105 の温度を検知する浄化部温度検知手段 117 から出力された検知温度に基づき、変成部 103 および／または浄化部 105 の内部の水蒸気量または凝縮水分量の供給過剰であると判定した場合、制御手段 205 はまず、水素生成部 118 の作動を停止させる。その後、制御手段 205 は、生成された可燃性ガスのパージを行う。続いて、制御手段 205 は、空気供給ポンプ 500、501 に駆動用制御信号を与えてこれらを駆動させて、水素生成部 118 の停止期間中に乾燥用空気供給経路 502、503 を介して空気供給ポンプ 500、501 から変成部 103 と浄化部 105 に空気を送り込む。ここで、変成部 103 や浄化部 105 の空気送風は、これらの内部の過剰水分を乾燥させるに十分な時間、たとえば数時間から一夜相当の時間を要する。また、空気供給ポンプ 500、501 からの空気流速は、できる限り早い方が効率的乾燥の点から好ましく、少なくとも通常の運転時よりも単位時間当たりの流量を高めておく。これにより、変成部 103 および／または浄化部 105 に溜まった過剰供給水を乾燥および排出する。

【0062】

こうして、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を検知できるため、この不具合に的確に対処でき、起動エネルギーの損失を低減できる。また、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を迅速かつ的確に除去でき、変成部および／または浄化部の触媒活性を的確に復帰させ得る。更には、触媒の活性が低下したまま発電に至ることを回避できて、一酸化炭素によってもたらされる燃料電池本体の触媒被毒も未然に防止できる。

【0063】

(実施の形態 4)

図 5 は、実施の形態 4 の燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【0064】

水素生成部 118、酸化剤ガス供給手段 200、燃料電池本体 203 および制御装置 205 の基本構成および基本動作は実施の形態 1 と同様であるため、それらの説明は省略する。

【0065】

本実施の形態 4 の主要な構成上の変更点は、過剰水蒸気等の影響によって変成部 103 に溜まった過剰凝集水分を加温して乾燥させる変成部用燃焼排ガス供給弁 600 を改質加熱部 102 と変成部 103 の間に設けた点と、過剰水蒸気等の影響によって浄化部 105 に溜まった過剰凝集水分を加温して乾燥させる浄化部用燃焼排ガス供給弁 601 を改質加熱部 102 と変成部 103 の間に設けた点にある。なお、これらの加温手段としてのガス供給弁 600、601 は制御装置 205 によって動作制御される。

【0066】

次に、実施の形態 4 の構成変更に係る動作を説明する。

【0067】

実施の形態 1 と同様の理由にて、制御手段 205 が、変成部 103 の温度を検知する変成部温度検知手段 116 および／または浄化部 105 の温度を検知する浄化部温度検知手段 117 から出力された検知温度に基づき、変成部 103 および／または浄化部 105 の内部の水蒸気量または凝縮水分量の供給過剰であると判定した場合、制御手段 205 はまず、水素生成部 118 の作動を停止させる。その後、制御手段 205 は、生成された可燃性ガスのパージを行う。続いて、制御装置 205 は、水素生成部 118 の停止期間中に改質加熱部 102 と変成部 103 を流動接続する燃焼排ガス供給路 602 に設けたガス供給弁 600 を開くよう供給弁 600 に信号を出力する。同様に、制御手段 205 は、水素生成部 118 の停止期間中に改質加熱部 102 と浄化部 105 を流動接続する燃焼排ガス供給路 603 に設けたガス供給弁 601 を開くよう供給弁 601 に信号を出力する。こうすることで、変成部 103 および／または浄化部 105 に溜まった過剰供給水を改質加熱部 102 の燃焼排ガスを活用して効率的に加温して乾燥できる。なお、変成部 103 や浄化部 105 の加熱は、過剰水分を十分に乾燥させ得る時間、例えば数時間から一夜相当

の時間を要する。

【0068】

こうして、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を検知できるため、この不具合に的確に対処でき、起動エネルギーの損失を低減できる。また、変成部および／または浄化部に過剰供給された水蒸気等に起因する不具合を迅速かつ的確に除去でき、変成部および／または浄化部の触媒活性を的確に復帰させ得る。更には、触媒の活性が低下したまま発電に至ることを回避できて、一酸化炭素によってもたらされる燃料電池本体の触媒被毒も未然に防止できる。

【産業上の利用可能性】

【0069】

本発明に係る燃料電池システムによれば、水素生成部の高性能化を図れて、家庭用発電装置として有用である。

【図面の簡単な説明】

【0070】

【図1】本発明の実施の形態1に係る燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【図2】水素生成部の改質部、変成部および浄化部について、水素生成部の起動時からの温度立ち上がり特性を、正常時と水蒸気過剰供給時を比較して説明した図である。

【図3】本発明の実施の形態2に係る燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【図4】本発明の実施の形態3に係る燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

【図5】本発明の実施の形態4に係る燃料電池システムの概略構成を説明する模式図である。

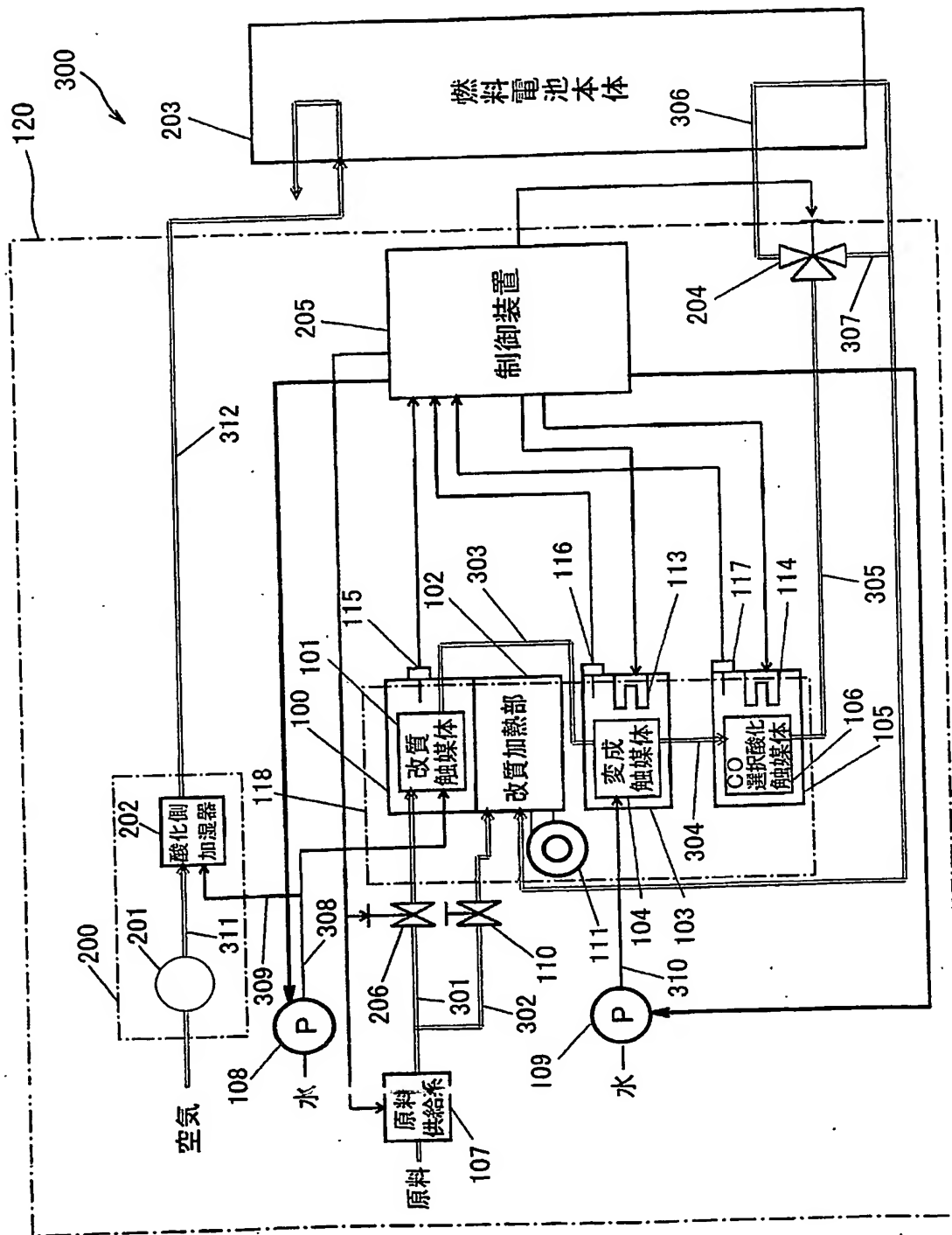
【符号の説明】

【0071】

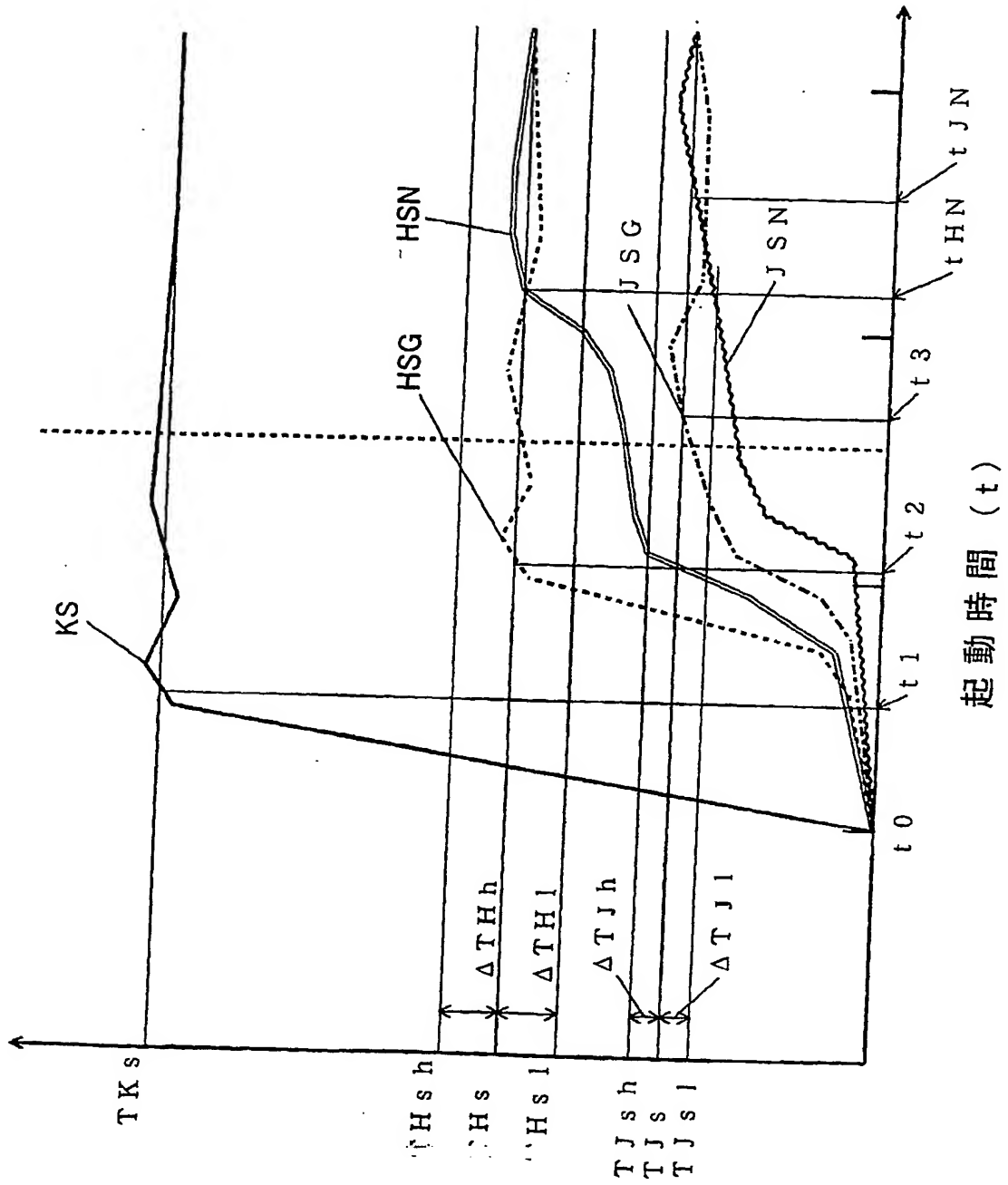
100	改質部
101	改質触媒体
102	改質加熱部
103	変成部
104	変成触媒体
105	浄化部
106	CO選択酸化触媒体
107	原料供給系
108	第一の水供給系
109	第二の水供給系
110、206	電磁弁
111	燃焼ファン
113	変成ヒータ
114	浄化ヒータ
115	改質部温度検知手段
116	変成部温度検知手段
117	浄化部温度検知手段
118	水素生成部
120	水素生成装置
200	酸化剤ガス供給手段
201	空気供給装置
202	酸化側加湿器
203	燃料電池本体

2 0 4	切り替え弁
3 0 0	燃料電池システム
3 0 1	第一の燃料ガス通路
3 0 2	第二の燃料ガス通路
3 0 3	第一の改質ガス通路
3 0 4	第二の改質ガス通路
3 0 5	第三の改質ガス通路
3 0 6	第一の分岐通路
3 0 7	第二の分岐通路
3 0 8	第一の水通路
3 0 9	第二の水通路
3 1 0	第三の水通路
3 1 1	第一の空気通路
3 1 2	第二の空気通路
4 0 0、4 0 1	排出弁
4 0 2、4 0 3	排出通路
5 0 0、5 0 1	空気供給ポンプ
5 0 2、5 0 3	乾燥用空気供給通路
6 0 0、6 0 1	燃焼排ガス供給弁
6 0 2、6 0 3	燃焼排ガス供給路

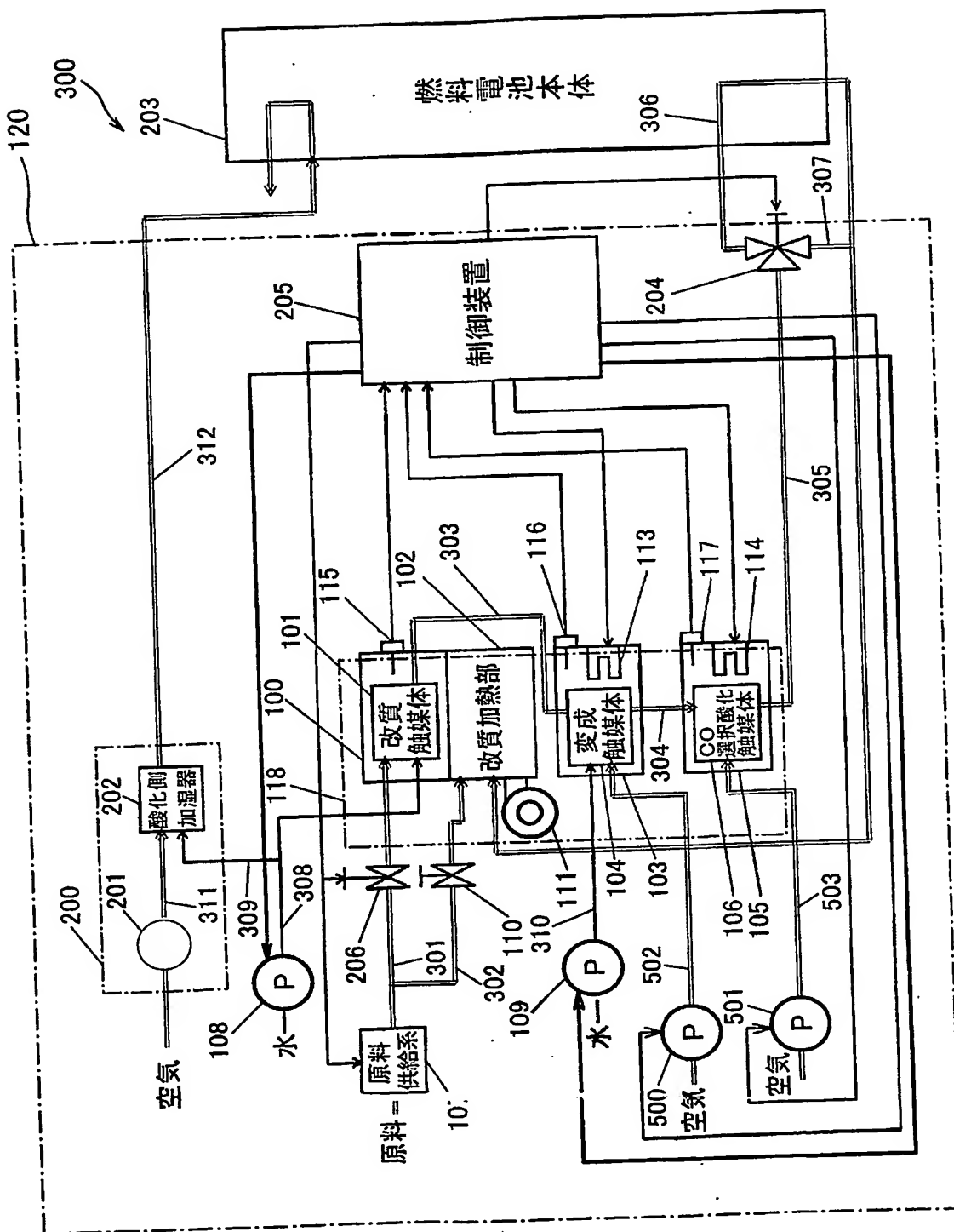
【書類名】 図面
【図 1】



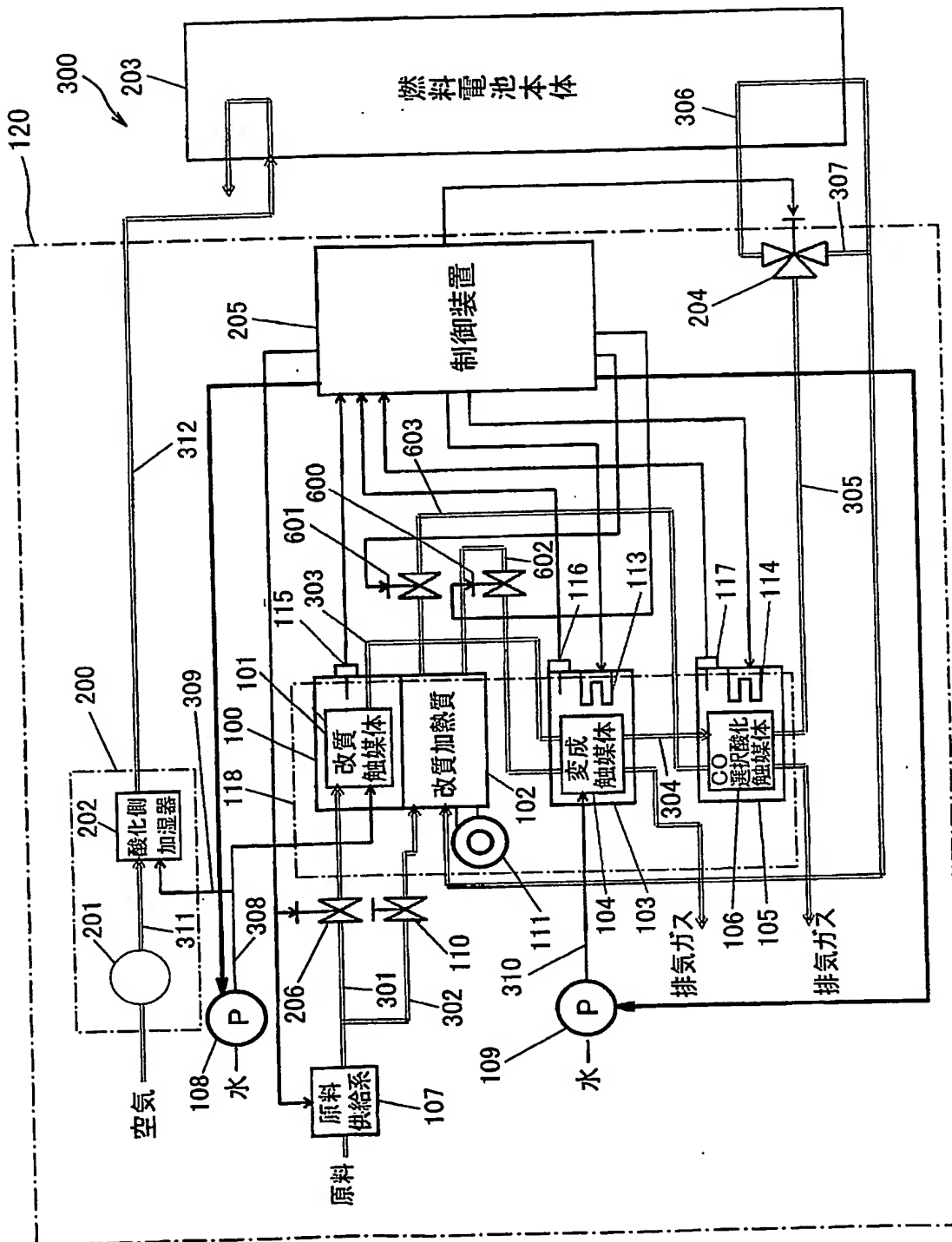
【図2】



【図 4】



【図5】



【書類名】 要約書**【要約】**

【課題】 水素生成部に過剰供給された水分による起動エネルギー損失を減らすと共に、これによってもたらされる触媒活性低下といった問題を解消する水素生成装置およびこれを備える燃料電池システムを提案する。

【解決手段】 水素生成装置 120 は、原料燃料と水蒸気を用いて改質する改質部 100、改質部 100 から供給されたガスをシフト反応させる変成部 103、及びシフト反応の反応ガス中の一酸化炭素ガス濃度を所定濃度以下に低下させる浄化部 105 を含む水素生成部 118 と、制御手段 205 とを備えている。この制御手段 205 は、変成部 103 の温度を検知する変成部温度検知手段 116 および／または浄化部 105 の温度を検知する浄化部温度検知手段 117 から出力された検知温度に基づき、前変成部および／または浄化部の内部の水蒸気量の供給状態を検知する。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-007605
受付番号	50400058684
書類名	特許願
担当官	鈴木 夏生 6890
作成日	平成16年 2月 3日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 1月15日

特願 2 0 0 4 - 0 0 7 6 0 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 8 2 1]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

氏 名

松下電器産業株式会社

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000397

International filing date: 14 January 2005 (14.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-007605
Filing date: 15 January 2004 (15.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 10 February 2005 (10.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.